

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2010 年 9 月 16 日(16.09.2010)

(10) 国際公開番号
WO 2010/103745 A1

PCT

- (51) 国際特許分類:
C08G 59/62 (2006.01) H01L 23/31 (2006.01)
H01L 23/29 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/001410
- (22) 国際出願日: 2010 年 3 月 2 日(02.03.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2009-057387 2009 年 3 月 11 日(11.03.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友ベークライト株式会社(SUMITOMO BAKE-LITE CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1400002 東京都品川区東品川 2 丁目 5 番 8 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 和田雅浩 (WADA, Masahiro) [JP/JP]; 〒1400002 東京都品川区東品川 2 丁目 5 番 8 号住友ベークライト株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 速水進治(HAYAMI, Shinji); 〒1410031 東京都品川区西五反田 7-9-2 五反田 T G ビル 9 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
一 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: SEMICONDUCTOR-SEALING RESIN COMPOSITION AND SEMICONDUCTOR DEVICE

(54) 発明の名称: 半導体封止用樹脂組成物及び半導体装置

(57) Abstract: Provided are a semiconductor-sealing resin composition that includes an epoxy resin (A), a hardening agent (B), and an inorganic filler (C), and that is characterized in that the epoxy resin (A) includes an epoxy resin (A1) with a predetermined structure, and the hardening agent (B) includes a phenol resin (B1) with a predetermined structure, wherein the content of a c = 1 component included in the total volume of the phenol resin (B1) is 40% or more in area percentage and the content of a c ≥ 4 component is 20% or less in area percentage as measured by the area method of gel permeation chromatography, as well as a semiconductor device that is characterized in that a semiconductor element is sealed with the hardening agent of the semiconductor-sealing resin composition.

(57) 要約: エポキシ樹脂 (A) と硬化剤 (B) と無機充填剤 (C) とを含む半導体封止用樹脂組成物であって、エポキシ樹脂 (A) が所定の構造を有するエポキシ樹脂 (A1) を含み、硬化剤 (B) が所定の構造を有するフェノール樹脂 (B1) を含み、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、フェノール樹脂 (B1) の全量中に含まれる c = 1 成分の含有割合が面積分率で 40% 以上であり、かつ c ≥ 4 成分の含有割合が面積分率で 20% 以下であることを特徴とする半導体封止用樹脂組成物、ならびに、その半導体封止用樹脂組成物の硬化物で半導体素子を封止して得られることを特徴とする半導体装置。



WO 2010/103745 A1

明 細 書

発明の名称：半導体封止用樹脂組成物及び半導体装置

技術分野

[0001] 本発明は、半導体封止用樹脂組成物及び半導体装置に関するものである。

背景技術

[0002] 半導体装置を樹脂封止する手法としては、トランスファー成形、圧縮成形、射出成形などがあり、より一般的であるトランスファー成形においては、通常、半導体封止用樹脂組成物は成形機へタブレット形態で供給される。タブレット状の半導体封止用樹脂組成物は、エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤、無機充填材などをロール又は押し出し機など用いて溶融混練を行い、冷却後に粉碎し、円柱又は直方体形状のタブレットに加圧成型（打錠）することで得ることができる。半導体封止用樹脂組成物の量産工程では、単発式又はロータリー式の打錠機を用いて連続的にタブレット成型が行われるが、この際、タブレットの割れや欠け、あるいは打錠機内の成型金型内面に樹脂組成物が付着してタブレット表面がざらざらとした状態となる外観不良が発生するなどの不具合が起こる場合がある。割れや欠けの生じたタブレットは、パッケージ成形工程で搬送不良や未充填不良を招き、外観不良は輸送中にタブレットの割れ、欠けの原因となる場合がある。上述の割れ、欠けや外観不良の低減手法としては、たとえば打錠機内の成型金型の表面粗度を最適化する、環境温度や金型温度を制御する方法などが提案されている（例えば、特許文献1、特許文献2、特許文献3参照。）。

[0003] 一方、近年の電子機器の小型化、軽量化、高性能化の市場動向を背景として、半導体素子の高集積化が年々進み、実装方式も、挿入実装から表面実装へと移り変わりつつある。半導体パッケージ形態は、表面実装型のQFP（Quad Flat Package）に代表される小型、軽量でかつ多ピン化に対応できるタイプが登場し、さらに多ピン化、ワイヤー配線の狭ピッチ化、さらには1パッケージ内にチップを積層する構造などが登場している

。このような半導体装置では、樹脂封止部分の肉厚が薄く、かつワイヤー密度が増大するために、従来の半導体装置よりも未充填やボイド、ワイヤー流れ等のパッケージ成形工程での成形不良が生じやすくなる傾向にある。そこで、流動特性を向上させる目的から、エポキシ樹脂ならびに硬化剤に、低分子量のものや結晶性のものを用いる手法が一般的に行われる。

[0004] しかしながら、低分子量、あるいは結晶性のエポキシ樹脂や硬化剤を配合した場合、樹脂組成物の流動性は向上し、成形歩留まりは向上するものの、タブレット打錠成型工程において割れ、欠けや外観不良が生じやすくなり、上述の打錠法でもタブレット成型性が十分改善せず、パッケージ成形性とタブレット成型性とが両立しない場合があった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特許第2551548号公報

特許文献2：特開平8-52734号公報

特許文献3：特開平10-175210号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

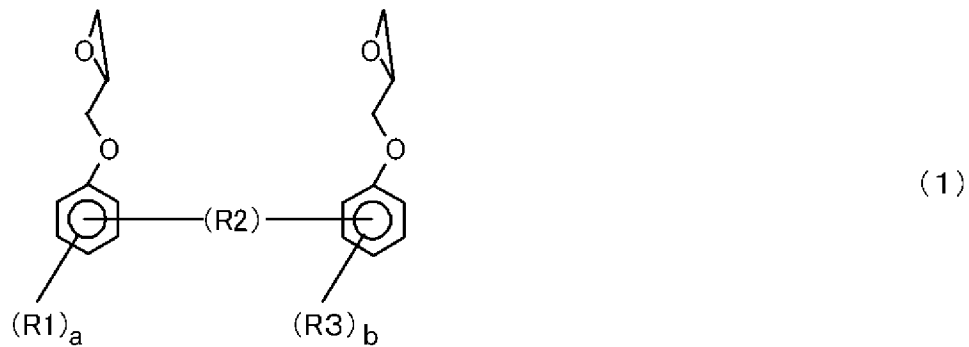
[0006] 本発明は、タブレット打錠歩留まりを損なうことなく、パッケージ成形時の流動性、成形性に優れた半導体封止用樹脂組成物及びそれを用いた半導体装置を提供するものである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、エポキシ樹脂（A）と硬化剤（B）と無機充填剤（C）とを含む半導体封止用樹脂組成物であって、

前記エポキシ樹脂（A）が下記一般式（1）：

[化1]

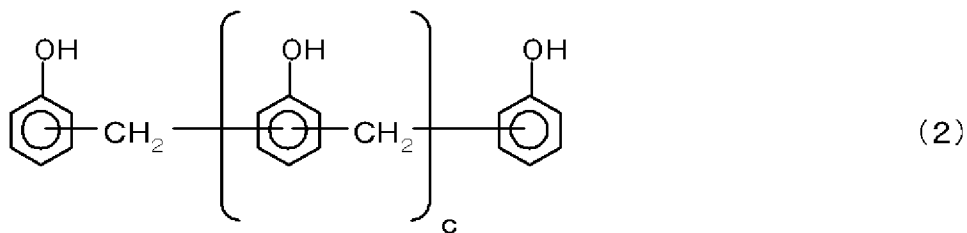


(ただし、上記一般式(1)において、R1及びR3は、炭素数1～5の炭化水素基であり、互いに同じであっても異なってもよい。R2は直接結合、炭素数1～5の炭化水素基、 $-S-$ 、 $-O-$ のいずれかを表す。a及びbは0～4の整数であり、互いに同じであっても異なってもよい。)

で表される構造を有するエポキシ樹脂(A1)を含み、

前記硬化剤(B)が下記一般式(2)：

[化2]



(ただし、上記一般式(2)において、cは0～20の整数である。)

で表されるフェノール樹脂(B1)を含み、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)の全量中に含まれるc=1成分の含有割合が面積分率で40%以上であり、かつc≥4成分の含有割合が面積分率で20%以下である、

ことを特徴とする。

[0008] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、前記フェノール樹脂(B1)が、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、前記一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)の全量中に含まれるc=0成分の含有

割合が面積分率で16%以下であるものとすることができる。

[0009] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、前記エポキシ樹脂(A1)が、アルキル基置換又は非置換のビスフェノール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ビスフェノールA/D、オキシビスフェノールからなる群から選ばれたフェノール化合物をジグリシジルエーテル化した結晶性エポキシ樹脂であるものとすることができる。

[0010] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、前記エポキシ樹脂(A1)が融点を持つものであり、その融点を T_{A1} とし、前記フェノール樹脂(B1)の軟化点を T_{B1} としたとき、両者の温度差の絶対値 $|T_{A1} - T_{B1}|$ が35℃以下であるものとすることができる。

[0011] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は、前記半導体封止用樹脂組成物が、タブレット状としてトランスファー成形法により半導体素子を封止するために用いられるものとすることができる。

[0012] 本発明の半導体装置は、上述の半導体封止用樹脂組成物の硬化物で半導体素子を封止して得られることを特徴とする。

発明の効果

[0013] 本発明に従うと、タブレット成型性を損なうことなく、パッケージ成形時の流動性、成形性に優れた半導体封止用樹脂組成物を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0014] 上述した目的、およびその他の目的、特徴および利点は、以下に述べる好適な実施の形態、およびそれに付随する以下の図面によってさらに明らかになる。

[0015] [図1]本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。

[図2]本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた片面封止型の半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。

[図3]硬化剤1および硬化剤2のGPCチャートである。

[図4]硬化剤3のGPCチャートである。

[図5]硬化剤4のGPCチャートである。

[図6]硬化剤5のGPCチャートである。

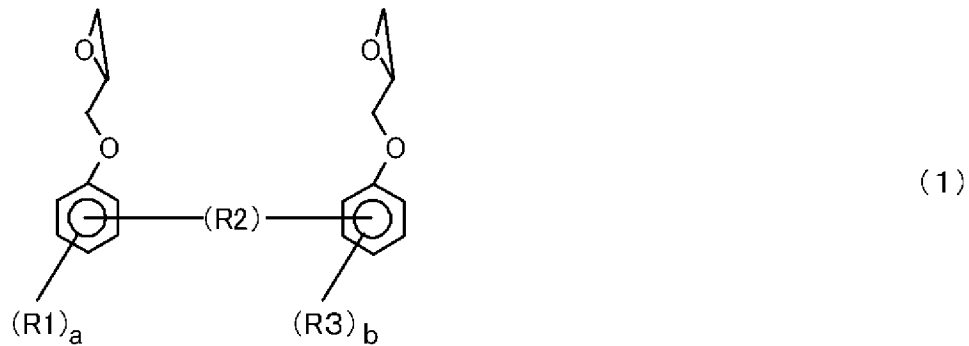
発明を実施するための形態

[0016] 本発明は、エポキシ樹脂（A）と硬化剤（B）と無機充填剤（C）とを含む半導体封止用樹脂組成物であって、前記エポキシ樹脂（A）が一般式（1）で表される構造を有するエポキシ樹脂（A1）を含み、前記硬化剤（B）が一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）を含み、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）の全量中に含まれる $c=1$ 成分の含有割合が面積分率で40%以上であり、かつ $c \geq 4$ 成分の含有割合が面積分率で20%以下であることにより、タブレット成型性とパッケージ成形性のバランスに優れる半導体封止用樹脂組成物が得られるものである。以下、本発明について詳細に説明する。

[0017] 先ず、半導体封止用樹脂組成物について説明する。本発明の半導体封止用樹脂組成物では、エポキシ樹脂（A）として下記一般式（1）で表される構造を有するエポキシ樹脂（A1）を用いる。一般式（1）において、置換基 R_1 及び R_3 は、炭素数1～5の炭化水素基であり、互いに同じであっても異なってもよく、 R_2 は直接結合、炭素数1～5の炭化水素基、 $-S-$ 、 $-O-$ のいずれかであり、 a 及び b は0～4の整数であり、互いに同じであっても異なってもよい。一般式（1）で表される構造を有するエポキシ樹脂（A1）は、分子量が小さいことから、熔融粘度が低く、良好な流動性を発現することができる。このような、エポキシ樹脂としては、たとえば、アルキル基置換又は非置換のビスフェノール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ビスフェノールA/D、オキシビスフェノール等のジグリシジルエーテル化合物を挙げることができ、市販品としては新日鐵化学（株）製YSLV-80XY（テトラメチルビスフェノールF型エポキシ）、同YSLV-120TE（下記式（3）で表されるアルキル基置換型ビスフェノールS型エポキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン製YX4

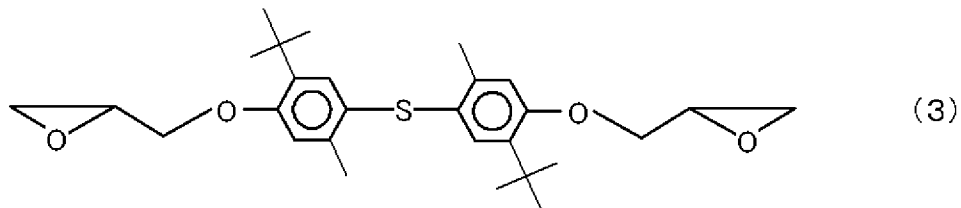
000H（テトラメチルビフェノールのエポキシ樹脂）、ジャパンエポキシレジン製YL6810（ビスフェノールA型エポキシ樹脂）などを挙げることができる。

[0018] [化3]



（ただし、上記一般式（１）において、R１及びR３は、炭素数１～５の炭化水素基であり、互いに同じであっても異なってもよい。R２は直接結合、炭素数１～５の炭化水素基、－S－、－O－のいずれかを表す。a及びbは０～４の整数であり、互いに同じであっても異なってもよい。）

[0019] [化4]



[0020] 一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（A１）は、上述の構造であれば、特に限定されないが、融点を持つものであって、その融点は、40℃以上であることが好ましく、45℃以上であることがより好ましい。融点の下限値が上記範囲内であると、エポキシ樹脂原料の輸送や保存中にブロッキングが生じにくく、作業性を損なう恐れが少ない。また、融点の上限値についても、特に限定されないが、140℃以下であることが好ましく、125℃以下であることがより好ましい。融点の上限値が上記範囲内であると、溶融混練中の樹脂の溶融不足による硬化性不良などの不具合を引き起こ

す恐れが少ない。

[0021] 本発明の半導体封止用樹脂組成物では、一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）を用いることによる効果が損なわれない範囲で、他のエポキシ樹脂を併用することができる。併用できるエポキシ樹脂としては、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂；トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、アルキル変性トリフェノールメタン型エポキシ樹脂等の多官能エポキシ樹脂；フェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂、ビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル型エポキシ樹脂、フェニレン骨格を有するナフトールアラルキル型エポキシ樹脂等のアラルキル型エポキシ樹脂；ジヒドロキシナフタレン型エポキシ樹脂、ナフトール又はジヒドロキシナフタレンの２量体をグリシジルエーテル化して得られるエポキシ樹脂等のナフトール型エポキシ樹脂；トリグリシジルイソシアヌレート、モノアリルジグリシジルイソシアヌレート等のトリアジン核含有エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン変性フェノール型エポキシ樹脂等の有橋環状炭化水素化合物変性フェノール型エポキシ樹脂、メトキシナフタレン型エポキシ樹脂、ジヒドロアントラキノ型エポキシ樹脂が挙げられる。半導体封止用樹脂組成物としての耐湿信頼性を考慮すると、イオン性不純物である Na^+ イオンや Cl^- イオンが極力少ない方が好ましく、硬化性の点からエポキシ当量としては 100 g/eq 以上、 500 g/eq 以下が好ましい。

[0022] 他のエポキシ樹脂を併用する場合における一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）の配合割合としては、全エポキシ樹脂（Ａ）に対して、 $25\text{ 質量}\%$ 以上であることが好ましく、 $45\text{ 質量}\%$ 以上であることがより好ましく、 $60\text{ 質量}\%$ 以上であることが特に好ましい。配合割合が上記範囲内であると、流動性を向上させる効果を得ることができる。

[0023] エポキシ樹脂（Ａ）全体の配合割合の下限值については、特に限定されないが、全半導体封止用樹脂組成物中に、 $2\text{ 質量}\%$ 以上であることが好ましく

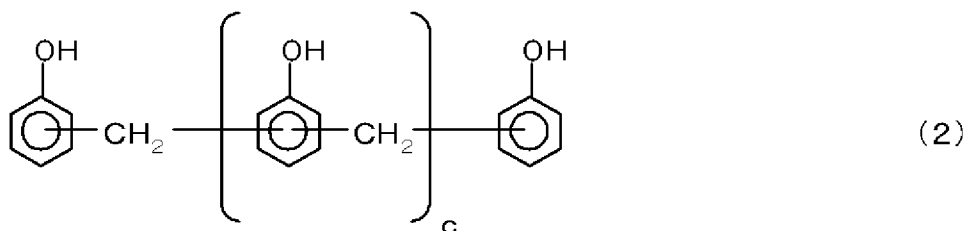
、4質量%以上であることがより好ましい。配合割合の下限値が上記範囲内であると、流動性の低下等を引き起こす恐れが少ない。また、エポキシ樹脂（A）全体の配合割合の上限値についても、特に限定されないが、全半導体封止用樹脂組成物中に、15質量%以下であることが好ましく、13質量%以下であることがより好ましい。配合割合の上限値が上記範囲内であると、耐半田性の低下等を引き起こす恐れが少ない。

[0024] 本発明の半導体封止用樹脂組成物は硬化剤（B）として、下記一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）を含み、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）の全量に対する $c=1$ の成分の含有割合が面積分率で40%以上であり、かつ $c \geq 4$ 成分の含有割合が面積分率で20%以下であるものを用いる。さらに、一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）の全量中に含まれる $c=0$ 成分の含有割合が面積分率で16%以下であることが好ましい。ここで、一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）の全量とは、 $c=1$ 成分、 $c \geq 4$ 成分、 $c=0$ 成分の含有割合がいかなるものであるかにかかわらず、半導体封止用樹脂組成物中に含まれる、1種又は複数の一般式（2）で表されるフェノール樹脂の合計を意味する。一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）において、一般式（2）の $c=0$ の成分は、低粘度であるものの、一分子中の水酸基が2個であるために、とりわけエポキシ樹脂（A1）のような2官能のエポキシ樹脂と溶融混練した場合に、分子同士の間の凝集力が十分でないために、タブレットの強度が低下する可能性があり、また硬化後も架橋構造を得ることは難しい。 $c=1$ の成分は、 $c=0$ に次いで低粘度であり、かつ一分子内に3個の水酸基を有することから、溶融混練が容易で、樹脂組成物状態でエポキシ樹脂（A1）のような2官能のエポキシ樹脂と良好な凝集力を発現し、硬化後も立体架橋構造を形成することが可能である。 c の数が増えるに伴って、粘度は高くなり、溶融混練性や流動性に乏しくなり、とりわけ繰り返し単位が $c \geq 4$ では、さらに自身の立体障害により、エポキシ樹脂（A1）のような2官能のエポキシ樹脂との反応性

が乏しくなる傾向がある。本発明の半導体封止用樹脂組成物は、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c = 1$ 成分の含有割合の下限值については面積分率で４０％以上であることが好ましく、５０％以上であることがより好ましく、５５％以上であることが特に好ましい。

$c = 1$ 成分の含有割合の下限值が上記範囲内であると、タブレット打錠歩留まりの低下を引き起こす恐れが少なく、かつ、樹脂組成物の流動性を向上させることができる。 $c = 1$ 成分の含有割合の上限值については、特に限定されないが、面積分率で８５％以下であることが好ましく、８０％以下であることがより好ましい。 $c = 1$ 成分の上限值が上記範囲内であると、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の合成収率が低くなりすぎることに
よる高コスト化の恐れが少ない。一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c \geq 4$ 成分の含有割合の上限值については、特に限定されないが、面積分率で２０％以下であることが好ましく、１５％以下であることがより好ましい。 $c \geq 4$ 成分の含有割合の上限值が上記範囲内であると、流動性の低下を引き起こす恐れが少ない。一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c = 0$ 成分の含有割合の上限值については、特に限定されないが、面積分率で１６％以下であることが好ましく、１２％以下であることがより好ましい。 $c = 0$ 成分の含有割合の上
限値が上記範囲内であると、タブレット成型時の割れ、欠けや外観不良を引き起こす恐れが少ない。なお、上述の各成分の含有割合は、後述するゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定によって求めることができる。

[0025] [化5]



(ただし、上記一般式(2)において、 c は0~20の整数である。)

[0026] 本発明では、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)が上述の構造であって、 $c=1$ 成分、 $c \geq 4$ 成分の含有割合が上述の範囲であれば、特に限定されないが、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)の軟化点の下限値は、 50°C 以上であることが好ましく、 60°C 以上であることがより好ましい。軟化点の下限値が上記範囲内であると、エポキシ樹脂原料の輸送や保存中にブロッキングが生じにくく、作業性を損なう恐れが少ない。また、軟化点の上限値については、特に限定されないが、 140°C 以下であることが好ましく、 125°C 以下であることがより好ましい。軟化点の上限値が上記範囲内であると、溶融混練中の樹脂の溶融不足による硬化性不良などの不具合を引き起こす恐れが少ない。

[0027] 一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)における一般式(2)の $c=1$ 成分の含有割合、 $c \geq 4$ 成分の含有割合及び $c=0$ 成分の含有割合は、次のようにして算出することができる。一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)のゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定を行って、検出されたピークに対応する各成分のPS換算分子量を求め、検出されたピーク面積の比から検出されたピークに対応する各成分の含有割合(面積分率)を算出することができる。

[0028] 本発明におけるゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定は次のように行なわれる。GPC装置は、ポンプ、インジェクター、ガードカラム、カラム及び検出器から構成され、溶媒にはテトラヒドロフラン(THF)を用いる。ポンプの流速は 0.5 ml/分 にて測定を行なう。これよりも高い流速では目的の分子量の検出精度が低くなるため好ましくない。また、上記の流速で精度よく測定を行なうためには流量精度のよいポンプを使用することが必要であり、流量精度は 0.10% 以下が好ましい。ガードカラムには市販のガードカラム(例えば、東ソー(株)製TSK GUARD COLUMN HHR-L:径 6.0 mm 、管長 40 mm)、カラムには市販のポリスチレンゲルカラム(東ソー(株)製TSK-GEL GMHH

R-L : 径 7.8 mm、管長 30 mm) を複数本直列接続させる。検出器には示差屈折率計 (RI 検出器。例えば、WATERS 社製示差屈折率 (RI) 検出器 W2414) を用いる。測定に先立ち、ガードカラム、カラム及び検出器内部は 40 °C に安定させておく。試料には、濃度 3 ~ 4 mg / ml に調整したエポキシ樹脂 (A) の THF 溶液を用意し、これを約 50 ~ 150 μ l インジェクターより注入して測定を行なう。試料の解析にあたっては、単分散ポリスチレン (以下 PS) 標準試料により作成した検量線を用いる。検量線は PS の分子量の対数値と PS のピーク検出時間 (保持時間) をプロットし、3 次式に回帰したものを用いる。検量線作成用の標準 PS 試料としては、昭和電工 (株) 製 Shodex スタンダード SL-105 シリーズの品番 S-1.0 (ピーク分子量 1060)、S-1.3 (ピーク分子量 1310)、S-2.0 (ピーク分子量 1990)、S-3.0 (ピーク分子量 2970)、S-4.5 (ピーク分子量 4490)、S-5.0 (ピーク分子量 5030)、S-6.9 (ピーク分子量 6930)、S-11 (ピーク分子量 10700)、S-20 (ピーク分子量 19900) を使用する。

[0029] 本発明では、フェノール樹脂 (B1) が一般式 (2) の構造で表され、 $c = 1$ 成分、 $c \geq 4$ 成分の量が上述の範囲であれば、重合の方法や成分量の調整方法に特に制限はない。重合方法の例としては、フェノールとホルムアルデヒドを酸触媒下で重縮合させた後、残留モノマー及び水分を蒸留除去する方法を挙げることができるが、市販のフェノールノボラック樹脂を用いてもよい。また、一般式 (2) の $c = 1$ 成分、 $c \geq 4$ 成分、 $c = 0$ 成分の量を調整するために、後述する蒸留、水洗、抽出、カラムクロマトグラフィー分別、あるいは所定の分子量分布のフェノールノボラックを混合するなどの手法を用いることができる。

[0030] 上記のフェノールには、市販のフェノールモノマーあるいはフェノールを溶剤希釈した溶液などを使用することができるが、工業用フェノールがコスト面から好ましい。上記ホルムアルデヒドは、パラホルムアルデヒド、トリオキサン、ホルムアルデヒド水溶液などホルムアルデヒド発生源となる物質

、あるいは、これらのホルムアルデヒドの溶液を使用することができる。通常は、ホルムアルデヒド水溶液を使用することが作業性やコストの面で好ましい。また、このほかにも合成原料として、予めフェノールとアルデヒドを用いて酸触媒下で重縮合させた重合物、それらの蒸留物、抽出物、分子量分級物、缶出物を用いてよく、他にも市販のビスフェノールFやフェノールノボラック樹脂を併用しても構わない。

[0031] 上記の酸触媒としては、通常フェノールノボラック樹脂合成において公知である酸触媒を用いることが可能である。例えば、硫酸、塩酸、リン酸、亜リン酸等の無機酸、あるいは、シュウ酸、蟻酸、有機ホスホン酸、パラトルエンスルホン酸、ジメチル硫酸等の有機酸、酢酸亜鉛、酢酸ニッケル等を用いることが可能であり、これらを単独あるいは、2つ以上組み合わせて使用することも可能である。なかでも、シュウ酸、塩酸は、容易にフェノール樹脂から触媒を除去できることから好ましい。

[0032] フェノールとホルムアルデヒドとの重縮合におけるフェノール（P）とホルムアルデヒド（F）の反応モル比（F/Pモル比）及び反応温度については、特に制限は無いが、通常、F/Pモル比は0.05～0.7モルの範囲で、反応温度は50～150℃の範囲で反応させることが好ましい。ここで、反応モル比（F/Pモル比）、又は反応温度を低くすることで、平均分子量を低減し、 $c \geq 4$ 成分の量を低く調整することができる。

[0033] 上述の蒸留による分子量調整方法としては、特に制限は無いが、たとえば常圧蒸留、減圧蒸留、水蒸気蒸留などの手法をあげることができる。蒸留操作の温度は、50℃以上、250℃以下での蒸留操作が好ましく、ここで蒸留温度が50℃未満の場合、蒸留による効率が悪くなり、生産性の観点から好ましくなく、250℃を超える場合は、フェノールノボラック樹脂の分解と高分子量化が起こるために好ましくない。具体的には、100～150℃の常圧蒸留することにより水分を、150～200℃、5000Paの条件で減圧蒸留することによりフェノールモノマー成分を、200～250℃、5000Paの条件で減圧水蒸気蒸留することにより一般式（2）の $c=0$

成分を、それぞれ効率よく除去することができ、これらを適宜組み合わせることで、一般式（２）の $c = 1$ 成分の含有割合を高めることができる。

[0034] 上述の水洗による分子量調整方法としては、具体的には、フェノールノブラック樹脂あるいは、フェノールノブラック樹脂を有機溶剤で溶解させたものに、水を加えて、常圧あるいは加圧の下、 $20 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度で攪拌させた後に、静置あるいは遠心分離で水相と有機相と分離させ、水相を系外へ除去することで、水相に溶解した低分子量成分、主にフェノールモノマー成分と一般式（２）の $c = 0$ 成分とを低減することができる。これらの操作により、結果として一般式（２）の $c = 1$ 成分量を調整することが可能である。

[0035] 上述の抽出による分子量調整方法としては、トルエン、キシレン等のフェノール樹脂に対する溶解性の低い非極性溶剤を、フェノールノブラック樹脂、フェノールノブラック樹脂水溶液、あるいは、アルコール等の極性溶剤に溶解させたフェノール樹脂に添加し、常圧あるいは加圧の下、 $20 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度で攪拌させてから、静置あるいは遠心分離で非極性溶剤相と他成分相とを分離させ、非極性溶剤相を系外へ除去することで、非極性溶剤相に溶解した高分子量成分を除去させることができる。これらの操作を行うことで、結果として、 $c \geq 4$ 成分の量を低減、調整することが可能である。

[0036] 上述の分別カラムによる分子量調整方法としては、分液ロート、ポリスチレンジェルを充填した分別カラムに、屈折率（RI）検出器、分液捕集用バルブを直列に接続し、分液ロートよりフェノールノブラック樹脂のテトラヒドロフラン溶液を供給した後、テトラヒドロフラン溶離液を供給し、屈折率（RI）チャートモニターし、所定のピークが検出されてから、消失するまでの間の抽出溶液を捕集することで、任意の分子量成分を採取することができる。

[0037] 上述の混合による分子量調整方法としては、特に制限は無いが、フェノールとホルムアルデヒドを用いて酸触媒下で重縮合させた重合物、市販のフェノールノブラック樹脂を蒸留、抽出、缶出、分別などの操作を行った後、こ

れら複数の樹脂を、融点以上の温度で溶融混合する、あるいは、溶剤に溶解した後に混合し溶剤を減圧除去して得たものを用いることによって、式（２）の $c = 1$ 成分、 $c \geq 4$ 成分、 $c = 0$ 成分の量を調整することも可能である。この場合、個別の樹脂単独としては、 $c = 1$ 成分、 $c \geq 4$ 成分の量が上述の範囲から外れるものを含む場合であってもよい。

[0038] 本発明の半導体封止用樹脂組成物では、フェノール樹脂（Ｂ１）を用いることによる効果が損なわれない範囲で、他の硬化剤を併用することができる。併用できる硬化剤としては、例えば重付加型の硬化剤、触媒型の硬化剤、縮合型の硬化剤等を挙げることができる。重付加型の硬化剤としては、例えば、ジエチレントリアミン（ＤＥＴＡ）、トリエチレンテトラミン（ＴＥＴＡ）、メタキシレンジアミン（ＭＸＤＡ）などの脂肪族ポリアミン、ジアミノジフェニルメタン（ＤＤＭ）、*m*-フェレンジアミン（ＭＰＤＡ）、ジアミノジフェニルスルホン（ＤＤＳ）などの芳香族ポリアミンのほか、ジシアンジアミド（ＤＩＣＹ）、有機酸ジヒドラジドを含むポリアミン化合物；ヘキサヒドロ無水フタル酸（ＨＨＰＡ）、メチルテトラヒドロ無水フタル酸（ＭＴＨＰＡ）などの脂環族酸無水物、無水トリメリット酸（ＴＭＡ）、無水ピロメリット酸（ＰＭＤＡ）、ベンゾフェノンテトラカルボン酸（ＢＴＤＡ）などの芳香族酸無水物などを含む酸無水物；フェノールアラルキル樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂などのフェノール樹脂系化合物；ポリサルファイド、チオエステル、チオエーテルなどのポリメルカプタン化合物；イソシアネートプレポリマー、ブロック化イソシアネートなどのイソシアネート化合物；カルボン酸含有ポリエステル樹脂などの有機酸類などが挙げられる。本発明の半導体封止用樹脂組成物で併用できる硬化剤としては、耐燃性、耐湿性、電気特性、硬化性、保存安定性等のバランスの点からフェノール樹脂系硬化剤が好ましい。フェノール樹脂系硬化剤は、一分子内にフェノール性水酸基を２個以上有するモノマー、オリゴマー、ポリマー全般であり、その分子量、分子構造を特に限定するものではないが、例えば、クレゾールノボラック樹脂等のノボラック型樹脂；トリフェノールメ

タン型フェノール樹脂等の多官能型フェノール樹脂；テルペン変性フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン変性フェノール樹脂等の変性フェノール樹脂；フェニレン骨格及び／又はビフェニレン骨格を有するフェノールアラルキル樹脂、フェニレン及び／又はビフェニレン骨格を有するナフトールアラルキル樹脂等のアラルキル型樹脂；ビスフェノールA、ビスフェノールAD等のビスフェノール化合物等が挙げられる。これらのうち、硬化性の点から水酸基当量は90 g／eq以上、250 g／eq以下のものが好ましい。

[0039] 硬化剤（B）全体の配合割合の下限值については、特に限定されないが、全半導体封止用樹脂組成物中に、0.8質量%以上であることが好ましく1.5質量%以上であることがより好ましい。配合割合の下限値が上記範囲内であると、十分な流動性を得ることができる。また、硬化剤（B）全体の配合割合の上限值についても、特に限定されないが、全半導体封止用樹脂組成物中に、10質量%以下であることが好ましく、8質量%以下であることがより好ましい。配合割合の上限値が上記範囲内であると、良好な耐半田性を得ることができる。

[0040] また、硬化剤（B）としてフェノール樹脂系硬化剤を用いる場合においては、エポキシ樹脂全体とフェノール樹脂系硬化剤全体との配合比率としては、エポキシ樹脂（A）全体のエポキシ基数（EP）とフェノール樹脂系硬化剤全体のフェノール性水酸基数（OH）との当量比（EP）／（OH）が0.8以上、1.3以下であることが好ましい。当量比がこの範囲であると、半導体封止用樹脂組成物の成形時に十分な硬化性を得ることができる。また、当量比がこの範囲であると、樹脂硬化物における良好な物性を得ることができる。

[0041] 本発明の半導体封止用樹脂組成物において、エポキシ樹脂（A1）が融点を持つものであり、その融点を T_{A1} とし、一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B1）の軟化点を T_{B1} としたとき、両者の温度差の絶対値 $|T_{A1} - T_{B1}|$ は、35℃以下であることが好ましく、30℃以下であることがより好ましい。エポキシ樹脂（A1）の融点と一般式（2）で表されるフェノール

ル樹脂（Ｂ１）の軟化点の温度差が、上述の範囲であると、良好なタブレット成型性を得ることができる。上述の温度差を小さくすることで、タブレット成型性、歩留まりが向上する理由は明らかではないものの、樹脂組成物の溶融混練工程においてエポキシ樹脂（Ａ１）と一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）とが速やかに溶融混合できる結果、冷却後のエポキシ樹脂と硬化剤との凝集力が向上することが考えられる。一方、結晶性エポキシ樹脂の融点が過剰に高い場合は、溶融が速やかに進行せずに硬化剤成分との混合が不足し、結晶性エポキシ樹脂の融点が過剰に低い場合は、他の成分よりも容易に低温で溶融するものの、加熱混合中に十分なシェアが加わらず硬化剤との混合、凝集力が不足することとなる。また、エポキシ樹脂（Ａ１）及びフェノール樹脂（Ｂ１）と併用するその他のエポキシ樹脂及び硬化剤の軟化点又は融点の下限值については、 50°C 以上であることが好ましく、 60°C 以上であることがより好ましい。また、エポキシ樹脂（Ａ１）及びフェノール樹脂（Ｂ１）と併用するその他のエポキシ樹脂及び硬化剤の軟化点又は融点の上限値については、特に限定されないが、 140°C 以下であることが好ましく、 125°C 以下であることがより好ましい。エポキシ樹脂（Ａ１）及びフェノール樹脂（Ｂ１）と併用するその他のエポキシ樹脂及び硬化剤の軟化点又は融点が上記範囲内であると、溶融混練中の樹脂の溶融不足によるタブレットの外観不良や欠損などの不具合を引き起こす恐れが少ない。

[0042] 本発明の半導体封止用樹脂組成物では、さらに（Ｃ）無機充填剤を用いることができる。本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができる無機充填剤（Ｃ）としては、一般に半導体封止用樹脂組成物に用いられているものを使用することができ、例えば、溶融シリカ、球状シリカ、結晶シリカ、アルミナ、窒化珪素、窒化アルミ等が挙げられる。無機充填剤（Ｃ）の粒径としては、金型キャビティへの充填性を考慮すると $0.01\mu\text{m}$ 以上、 $150\mu\text{m}$ 以下であることが望ましい。

[0043] 無機充填剤（Ｃ）の含有割合の下限值としては、半導体封止用樹脂組成物全体の $75\text{質量}\%$ 以上であることが好ましく、 $80\text{質量}\%$ 以上であることが

より好ましく、83質量%以上であることが特に好ましい。無機充填剤（C）の含有割合の下限値が上記範囲内であると、半導体封止用樹脂組成物は良好なタブレット成型性を得ることができ、その硬化物物性として、吸湿量が増加したり、強度が低下したりすることがなく、良好な耐半田クラック性を得ることができる。また、無機充填剤（C）の含有割合の上限値としては、半導体封止用樹脂組成物全体の93質量%以下であることが好ましく、91質量%以下であることがより好ましく、90質量%以下であることが特に好ましい。無機充填剤（C）の含有割合の上限値が上記範囲内であると、流動性が損なわれることがなく、良好な成形性を得ることができる。

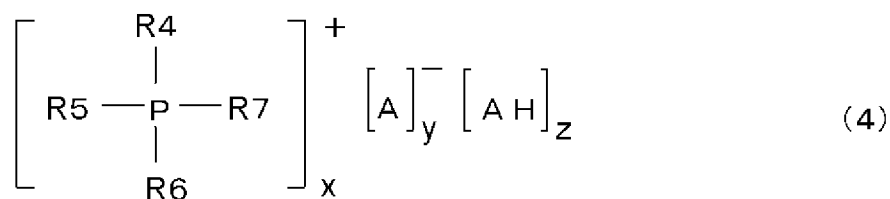
[0044] 本発明の半導体封止用樹脂組成物では、さらに硬化促進剤（D）を用いることができる。硬化促進剤（D）は、エポキシ樹脂のエポキシ基とフェノール性水酸基を2個以上含む化合物のフェノール性水酸基との反応を促進するものであればよく、一般の半導体封止用樹脂組成物に使用されているものを利用することができる。具体例としては、有機ホスフィン、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物等のリン原子含有化合物；1, 8-ジアザビシクロ（5, 4, 0）ウンデセン-7、ベンジルジメチルアミン、2-メチルイミダゾール等の窒素原子含有化合物が挙げられる。これらのうち、リン原子含有化合物が好ましく、流動性と硬化性のバランスの観点からは、テトラ置換ホスホニウム化合物、ホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物等の潜伏性を有する触媒がより好ましい。流動性という点を考慮するとテトラ置換ホスホニウム化合物が特に好ましく、また半導体封止用樹脂組成物の硬化物熱時低弾性率という点を考慮するとホスホベタイン化合物、ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物が特に好ましく、また潜伏的硬化性という点を考慮すると、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物が特に好ましい。

[0045] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができる有機ホスフィンと

しては、例えばエチルホスフィン、フェニルホスフィン等の第1ホスフィン；ジメチルホスフィン、ジフェニルホスフィン等の第2ホスフィン；トリメチルホスフィン、トリエチルホスフィン、トリブチルホスフィン、トリフェニルホスフィン等の第3ホスフィンが挙げられる。

[0046] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができるテトラ置換ホスホニウム化合物としては、例えば下記一般式(4)で表される化合物等が挙げられる。

[0047] [化6]



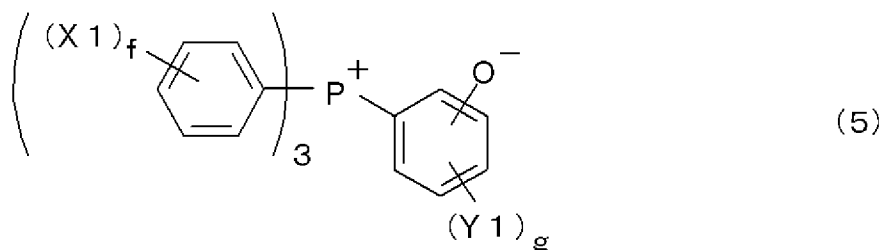
(ただし、上記一般式(4)において、Pはリン原子を表す。R4、R5、R6及びR7は芳香族基又はアルキル基を表す。Aはヒドロキシル基、カルボキシル基、チオール基から選ばれる官能基のいずれかを芳香環に少なくとも1つ有する芳香族有機酸のアニオンを表す。AHはヒドロキシル基、カルボキシル基、チオール基から選ばれる官能基のいずれかを芳香環に少なくとも1つ有する芳香族有機酸を表す。x、yは1～3の整数、zは0～3の整数であり、かつx=yである。)

[0048] 一般式(4)で表される化合物は、例えば以下のようにして得られるがこれに限定されるものではない。まず、テトラ置換ホスホニウムハライドと芳香族有機酸と塩基を有機溶剤に混ぜ均一に混合し、その溶液系内に芳香族有機酸アニオンを発生させる。次いで水を加えると、一般式(4)で表される化合物を沈殿させることができる。一般式(4)で表される化合物において、リン原子に結合するR4、R5、R6及びR7がフェニル基であり、かつAHはヒドロキシル基を芳香環に有する化合物、すなわちフェノール類であり、かつAは該フェノール類のアニオンであるのが好ましい。

[0049] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができるホスホベタイン化

合物としては、例えば下記一般式（５）で表される化合物等が挙げられる。

[化7]

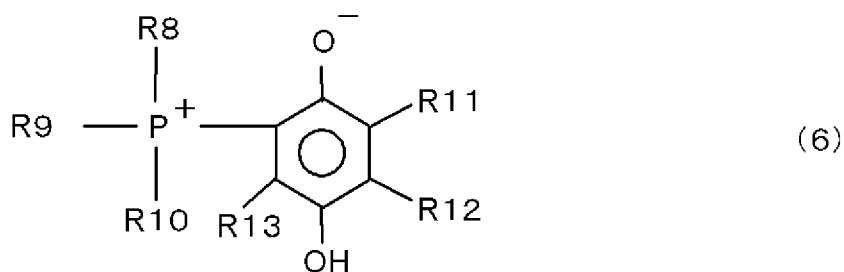


（ただし、上記一般式（５）において、X１は炭素数１～３のアルキル基、Y１はヒドロキシル基を表す。fは０～５の整数であり、gは０～４の整数である。）

[0050] 一般式（５）で表される化合物は、例えば以下のようにして得られる。まず、第三ホスフィンであるトリ芳香族置換ホスフィンとジアゾニウム塩とを接触させ、トリ芳香族置換ホスフィンとジアゾニウム塩が有するジアゾニウム基とを置換させる工程を経て得られる。しかしこれに限定されるものではない。

[0051] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができるホスフィン化合物とキノン化合物との付加物としては、例えば下記一般式（６）で表される化合物等が挙げられる。

[化8]



（ただし、上記一般式（６）において、Pはリン原子を表す。R８、R９及びR１０は炭素数１～１２のアルキル基又は炭素数６～１２のアリール基を表し、互いに同一であっても異なってもよい。R１１、R１２及びR１

3は水素原子又は炭素数1～12の炭化水素基を表し、互いに同一であっても異なってもよく、R₁₁とR₁₂が結合して環状構造となってもよい。)

[0052] ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物に用いるホスフィン化合物としては、例えばトリフェニルホスフィン、トリス（アルキルフェニル）ホスフィン、トリス（アルコキシフェニル）ホスフィン、トリナフチルホスフィン、トリス（ベンジル）ホスフィン等の芳香環に無置換又はアルキル基、アルコキシ基等の置換基が存在するものが好ましく、アルキル基、アルコキシ基等の置換基としては1～6の炭素数を有するものが挙げられる。入手しやすさの観点からはトリフェニルホスフィンが好ましい。

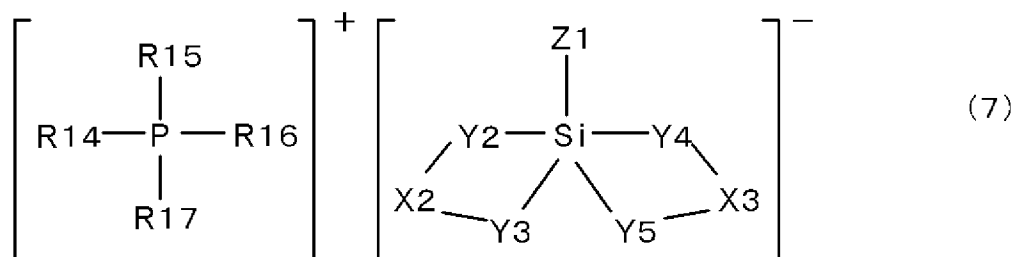
[0053] またホスフィン化合物とキノン化合物との付加物に用いるキノン化合物としては、*o*-ベンゾキノン、*p*-ベンゾキノン、アントラキノン類が挙げられ、中でも*p*-ベンゾキノンが保存安定性の点から好ましい。

[0054] ホスフィン化合物とキノン化合物との付加物の製造方法としては、有機第三ホスフィンとベンゾキノン類の両者が溶解することができる溶媒中で接触、混合させることにより付加物を得ることができる。溶媒としてはアセトンやメチルエチルケトン等のケトン類で付加物への溶解性が低いものがよい。しかしこれに限定されるものではない。

[0055] 一般式（6）で表される化合物において、リン原子に結合するR₈、R₉及びR₁₀がフェニル基であり、かつR₁₁、R₁₂及びR₁₃が水素原子である化合物、すなわち1,4-ベンゾキノンとトリフェニルホスフィンを付加させた化合物が半導体封止用樹脂組成物の硬化物の熱時弾性率を低下させる点で好ましい。

[0056] 本発明の半導体封止用樹脂組成物で用いることができるホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物としては、例えば下記一般式（7）で表される化合物等が挙げられる。

[化9]



(ただし、上記一般式(7)において、Pはリン原子を表し、Siは珪素原子を表す。R14、R15、R16及びR17は、それぞれ、芳香環又は複素環を有する有機基、あるいは脂肪族基を表し、互いに同一であっても異なってもよい。式中X2は、基Y2及びY3と結合する有機基である。式中X3は、基Y4及びY5と結合する有機基である。Y2及びY3は、プロトン供与性基がプロトンを放出してなる基を表し、同一分子内の基Y2及びY3が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。Y4及びY5はプロトン供与性基がプロトンを放出してなる基を表し、同一分子内の基Y4及びY5が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。X2、及びX3は互いに同一であっても異なってもよく、Y2、Y3、Y4、及びY5は互いに同一であっても異なってもよい。Z1は芳香環又は複素環を有する有機基、あるいは脂肪族基である。)

[0057] 一般式(7)において、R14、R15、R16及びR17としては、例えば、フェニル基、メチルフェニル基、メトキシフェニル基、ヒドロキシフェニル基、ナフチル基、ヒドロキシナフチル基、ベンジル基、メチル基、エチル基、n-ブチル基、n-オクチル基及びシクロヘキシル基等が挙げられ、これらの中でも、フェニル基、メチルフェニル基、メトキシフェニル基、ヒドロキシフェニル基、ヒドロキシナフチル基等の置換基を有する芳香族基もしくは無置換の芳香族基がより好ましい。

[0058] また、一般式(7)において、X2は、Y2及びY3と結合する有機基である。同様に、X3は、基Y4及びY5と結合する有機基である。Y2及びY3はプロトン供与性基がプロトンを放出してなる基であり、同一分子内の

基 Y 2 及び Y 3 が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。同様に Y 4 及び Y 5 はプロトン供与性基がプロトンを放出してなる基であり、同一分子内の基 Y 4 及び Y 5 が珪素原子と結合してキレート構造を形成するものである。基 X 2 及び X 3 は互いに同一であっても異なってもよく、基 Y 2、Y 3、Y 4、及び Y 5 は互いに同一であっても異なってもよい。このような一般式 (7) 中の $-Y 2-X 2-Y 3-$ 、及び $-Y 4-X 3-Y 5-$ で表される基は、プロトン供与体が、プロトンを 2 個放出してなる基で構成されるものであり、プロトン供与体としては、例えば、カテコール、ピロガロール、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレン、2, 2'-ビフェノール、1, 1'-ビ-2-ナフトール、サリチル酸、1-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸、3-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸、クロラニル酸、タンニン酸、2-ヒドロキシベンジルアルコール、1, 2-シクロヘキサンジオール、1, 2-プロパンジオール及びグリセリン等が挙げられるが、これらの中でも、カテコール、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレンがより好ましい。

[0059] また、一般式 (7) 中の Z 1 は、芳香環又は複素環を有する有機基又は脂肪族基を表し、これらの具体的な例としては、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基及びオクチル基等の脂肪族炭化水素基や、フェニル基、ベンジル基、ナフチル基及びビフェニル基等の芳香族炭化水素基、グリシジルオキシプロピル基、メルカプトプロピル基、アミノプロピル基及びビニル基等の反応性置換基などが挙げられるが、これらの中でも、メチル基、エチル基、フェニル基、ナフチル基及びビフェニル基が熱安定性の面から、より好ましい。

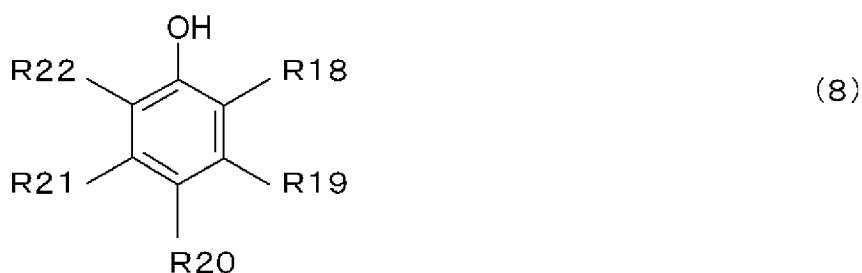
[0060] ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物の製造方法としては、メタノールを入れたフラスコに、フェニルトリメトキシシラン等のシラン化合物、2, 3-ジヒドロキシナフタレン等のプロトン供与体を加えて溶かし、次に室温攪拌下ナトリウムメトキシド-メタノール溶液を滴下する。さらにそこへ予め用意したテトラフェニルホスホニウムブロマイド等のテトラ置換ホ

スホニウムハライドをメタノールに溶かした溶液を室温攪拌下滴下すると結晶が析出する。析出した結晶を濾過、水洗、真空乾燥すると、ホスホニウム化合物とシラン化合物との付加物が得られる。しかし、これに限定されるものではない。

[0061] 本発明の半導体封止用樹脂組成物に用いることができる硬化促進剤（D）の配合割合は、全樹脂組成物中0.1質量%以上、1質量%以下であることがより好ましい。硬化促進剤（D）の配合割合が上記範囲内であると、十分な硬化性を得ることができる。また、硬化促進剤（D）の配合割合が上記範囲内であると、十分な流動性を得ることができる。

[0062] 本発明では、さらに芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物（E）を用いることができる。芳香環を構成する2個以上の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物（E）（以下、「化合物（E）」とも称する。）は、これを用いることにより、エポキシ樹脂（A）と硬化剤（B）との架橋反応を促進させる硬化促進剤として、潜伏性を有しないリン原子含有硬化促進剤を用いた場合であっても、樹脂組成物の溶融混練中での反応を抑えることができ、安定して半導体封止用樹脂組成物を得ることができる。また、化合物（E）は、半導体封止用樹脂組成物の溶融粘度を下げ、流動性を向上させる効果も有するものである。化合物（E）としては、下記一般式（8）で表される単環式化合物又は下記一般式（9）で表される多環式化合物等を用いることができ、これらの化合物は水酸基以外の置換基を有していてもよい。

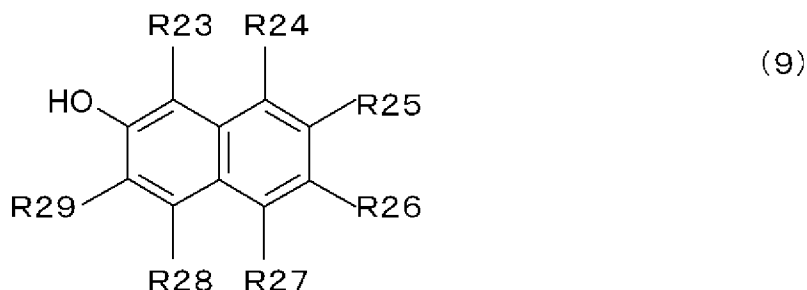
[0063] [化10]



（ただし、上記一般式（8）において、R18、R22はどちらか一方が水

酸基であり、片方が水酸基のとき他方は水素原子、水酸基又は水酸基以外の置換基である。R 1 9、R 2 0及びR 2 1は水素原子、水酸基又は水酸基以外の置換基である。)

[0064] [化11]



(ただし、上記一般式 (9) において、R 2 3、R 2 9はどちらか一方が水酸基であり、片方が水酸基のとき他方は水素原子、水酸基又は水酸基以外の置換基である。R 2 4、R 2 5、R 2 6、R 2 7及びR 2 8は水素原子、水酸基又は水酸基以外の置換基である。)

[0065] 一般式 (8) で表される単環式化合物の具体例としては、例えば、カテコール、ピロガロール、没食子酸、没食子酸エステル又はこれらの誘導体が挙げられる。また、一般式 (9) で表される多環式化合物の具体例としては、例えば、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレン及びこれらの誘導体が挙げられる。これらのうち、流動性と硬化性の制御のしやすさから、芳香環を構成する2個の隣接する炭素原子にそれぞれ水酸基が結合した化合物が好ましい。また、混練工程での揮発を考慮した場合、母核は低揮発性で秤量安定性の高いナフタレン環である化合物とすることがより好ましい。この場合、化合物 (E) を、具体的には、例えば、1, 2-ジヒドロキシナフタレン、2, 3-ジヒドロキシナフタレン及びその誘導体等のナフタレン環を有する化合物とすることができる。これらの化合物 (E) は1種類を単独で用いても2種以上を併用してもよい。

[0066] かかる化合物 (E) の配合割合は、全半導体封止用樹脂組成物中に0. 01質量%以上、1質量%以下であることが好ましく、より好ましくは0. 03質量%以上、0. 8質量%以下、特に好ましくは0. 05質量%以上、0

5質量%以下である。化合物（E）の配合割合の下限值が上記範囲内であると、半導体封止用樹脂組成物の十分な低粘度化と流動性向上効果を得ることができる。また、化合物（E）の配合割合の上限値が上記範囲内であると、半導体封止用樹脂組成物の硬化性の低下や硬化物物性の低下を引き起こす恐れが少ない。

[0067] 本発明の半導体封止用樹脂組成物においては、エポキシ樹脂（A）と無機充填剤（C）との密着性を向上させるため、シランカップリング剤等の密着助剤（F）をさらに添加することができる。その例としては特に限定されないが、エポキシシラン、アミノシラン、ウレイドシラン、メルカプトシラン等が挙げられ、エポキシ樹脂と無機充填剤との間で反応し、エポキシ樹脂と無機充填剤の界面強度を向上させるものであればよい。また、シランカップリング剤は、前述の化合物（E）と併用することで、半導体封止用樹脂組成物の熔融粘度を下げ、流動性を向上させるという化合物（E）の効果を高めることもできるものである。

[0068] より具体的には、エポキシシランとしては、例えば、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、 β -(3, 4エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン等が挙げられる。また、アミノシランとしては、例えば、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル) γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル) γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニル γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニル γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル) γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-6-(アミノヘキシル)3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-3-(トリメトキシシリルプロピル)-1, 3-ベンゼンジメタナン等が挙げられる。また、ウレイドシランとしては、例えば、 γ -ウレイドプロピルトリエトキシシラン、ヘキサメチルジシラザン等が挙げられる。また、メルカプトシランとしては、

例えば、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。これらのシランカップリング剤は1種類を単独で用いても2種類以上を併用してもよい。

[0069] 本発明の半導体封止用樹脂組成物に用いることができるシランカップリング剤等の密着助剤（F）の配合割合としては、全樹脂組成物中0.01質量%以上、1質量%以下が好ましく、より好ましくは0.05質量%以上、0.8質量%以下、特に好ましくは0.1質量%以上、0.6質量%以下である。シランカップリング剤等の密着助剤（F）の配合割合が上記下限値以上であれば、エポキシ樹脂と無機充填剤との界面強度が低下することがなく、半導体装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。また、シランカップリング剤等の密着助剤（F）の配合割合が上記範囲内であれば、樹脂組成物の硬化物の吸水性が増大することがなく、半導体装置における良好な耐半田クラック性を得ることができる。

[0070] 本発明の半導体封止用樹脂組成物では、前述した成分以外に、カーボンブラック、ベンガラ、酸化チタン等の着色剤；カルナバワックス等の天然ワックス、ポリエチレンワックス等の合成ワックス、ステアリン酸やステアリン酸亜鉛等の高級脂肪酸及びその金属塩類若しくはパラフィン等の離型剤；シリコーンオイル、シリコーンゴム等の低応力添加剤；酸化ビスマス水和物等の無機イオン交換体；水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等の金属水酸化物や、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛、フォスファゼン、三酸化アンチモン等の難燃剤等の添加剤を適宜配合してもよい。

[0071] 本発明の半導体封止用樹脂組成物の製造方法に特に制限は無いが、前述した成分、及びその他の添加剤等を所定量配合したものを、たとえばミキサー、ジェットミル、ボールミル等を用いて常温で均一に粉碎、混合した後、加熱ロール、ニーダー又は押出機等の混練機を用いて90～120℃程度まで樹脂組成物を加温しながら熔融し混練を行い、混練後の樹脂組成物を冷却、粉碎し、顆粒又は粉末状の樹脂組成物を得ることができる。樹脂組成物の粉末又は顆粒の粒度は、5mm以下が好ましい。5mmを越えると打錠時に充

填不良をおこし、タブレットの重量のバラツキが大きくなる。

[0072] さらに、得られた樹脂組成物の粉末又は顆粒を打錠成型することによりタブレットを得ることができる。打錠成型に用いる装置としては、単発式、又は多連ロータリー式の打錠機を用いることができる。タブレットの形状は特に限定はないが、円柱状が好ましい。打錠機の杵、臼及び環境の温度に特に制限はないが、35℃以下が好ましい。35℃を超えると樹脂組成物が反応により粘度上昇し、流動性が損なわれる恐れがある。打錠圧力は $400 \times 10^4 \sim 3000 \times 10^4 \text{ Pa}$ の範囲が好ましい。打錠圧力が上記の上限値を超えるとタブレット打錠直後に破壊が生じる恐れがあり、下限値を満たさない場合には、十分な凝集力が得られないために、輸送中にタブレットの破壊が生じる恐れがある。打錠機の杵、臼の金型の材質、表面処理に特に限定はなく、公知の材質のものを使用することができ、表面処理の例としては、たとえば放電加工、離型剤のコーティング、メッキ処理、研磨などを挙げることができる。

[0073] 次に、本発明の半導体装置について説明する。本発明の半導体封止用樹脂組成物の硬化物により半導体素子を封止し半導体装置を製造するには、例えば、半導体素子を搭載したリードフレーム、回路基板等を金型キャビティ内に設置した後、半導体封止用樹脂組成物をトランスファーモールド、コンプレッションモールド、インジェクションモールド等の成形方法で成形硬化すればよい。

[0074] 本発明の半導体装置で封止される半導体素子としては、特に限定されるものではなく、例えば、集積回路、大規模集積回路、トランジスタ、サイリスタ、ダイオード、固体撮像素子等が挙げられる。

[0075] 本発明の半導体装置の形態としては、特に限定されないが、例えば、デュアル・インライン・パッケージ（DIP）、プラスチック・リード付きチップ・キャリア（PLCC）、クワッド・フラット・パッケージ（QFP）、ロー・プロファイル・クワッド・フラット・パッケージ（LQFP）、スモール・アウトライン・パッケージ（SOP）、スモール・アウトライン・J

リード・パッケージ（SOJ）、薄型スモール・アウトライン・パッケージ（TSOP）、薄型クワッド・フラット・パッケージ（TQFP）、テープ・キャリア・パッケージ（TCP）、ボール・グリッド・アレイ（BGA）、チップ・サイズ・パッケージ（CSP）等が挙げられる。

[0076] トランスファーモールドなどの成形方法で半導体封止用樹脂組成物の硬化物により半導体素子を封止した本発明の半導体装置は、そのまま、或いは80℃から200℃程度の温度で、10分から10時間程度の時間をかけて完全硬化させた後、電子機器等に搭載される。

[0077] 図1は、本発明に係る半導体封止用樹脂組成物を用いた半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。ダイパッド3上に、ダイボンダ材硬化体2を介して半導体素子1が固定されている。半導体素子1の電極パッドとリードフレーム5との間はワイヤー4によって接続されている。半導体素子1は、半導体封止用樹脂組成物の硬化体6によって封止されている。

[0078] 図2は、本発明に係る樹脂組成物を用いた片面封止型の半導体装置の一例について、断面構造を示した図である。基板8上に、溶剤レジスト7およびダイボンダ材硬化体2を介して半導体素子1が固定されている。半導体素子1の電極パッドと基板8上の電極パッドとの間はワイヤー4によって、溶剤レジスト7を介して接続されている。封止用樹脂組成物の硬化体6によって、基板8の半導体素子1が搭載された片面側のみが封止されている。基板8上の電極パッドは基板8上の非封止面側の半田ボール9と内部で接合されている。

[0079] 本発明に従うと、タブレット成型性を損なうことなく、パッケージ成形時の流動性、成形性に優れた半導体封止用樹脂組成物を得ることができるため、タブレット状の半導体封止用樹脂組成物を用いて半導体素子を封止成形して得られる半導体装置、とりわけ、樹脂封止部分の肉厚が薄く、かつワイヤー密度が高い、多ピン化、ワイヤー配線の狭ピッチ化、又は複数の半導体チップを積層する構造の半導体装置に好適に用いることができる。

実施例

[0080] 以下、本発明を実施例にて具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら限定されるものではない。以下配合量は質量部とする。実施例、比較例で用いた成分について、以下に示す。

[0081] また、硬化剤 1～5 のゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定は次の条件で行なった。フェノールノボラック樹脂 1 の試料 20mg に溶剤テトラヒドロフラン（THF）を 6ml 加えて十分溶解し GPC 測定に供した。GPC システムは、WATERS 社製モジュール W2695、東ソー（株）製 TSK GUARDCOLUMN HHR-L（径 6.0mm、管長 40mm、ガードカラム）、東ソー（株）製 TSK-GEL GMHHR-L（径 7.8mm、管長 30mm、ポリスチレンジェルカラム）2 本、WATERS 社製示差屈折率（RI）検出器 W2414 を直列に接続したものをを用いた。ポンプの流速は 0.5ml/分、カラム及び示差屈折率計内温度を 40℃とし、測定溶液を 100μl インジェクターより注入して測定を行った。試料の解析にあたっては、単分散ポリスチレン（以下 PS）標準試料により作成した検量線を用いる。検量線は PS の分子量の対数値と PS のピーク検出時間（保持時間）をプロットし、3 次式に回帰したものを用いる。検量線作成用の標準 PS 試料としては、昭和電工（株）製 Shodex スタンダード SL-105 シリーズの品番 S-1.0（ピーク分子量 1060）、S-1.3（ピーク分子量 1310）、S-2.0（ピーク分子量 1990）、S-3.0（ピーク分子量 2970）、S-4.5（ピーク分子量 4490）、S-5.0（ピーク分子量 5030）、S-6.9（ピーク分子量 6930）、S-11（ピーク分子量 10700）、S-20（ピーク分子量 19900）を使用した。

[0082] （エポキシ樹脂）

エポキシ樹脂 1：テトラメチルビスフェノール F 型エポキシ樹脂（東都化成（株）製、YSLV-80XY。エポキシ当量 190、融点 80℃。）

エポキシ樹脂 2：ビスフェノール A 型エポキシ樹脂（ジャパンエポキシレジン（株）製、YL6810。エポキシ当量 172、融点 45℃。）

エポキシ樹脂 3 : テトラメチルビフェニル型エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン (株) 製、YX4000H。エポキシ当量 185、融点 107℃。)

エポキシ樹脂 4 : 下記式 (3) で表されるエポキシ樹脂 (東都化成 (株) 製、YSLV-120TE。エポキシ当量 240、融点 120℃。)

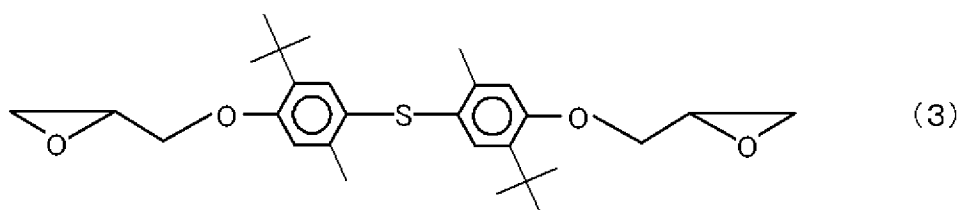
エポキシ樹脂 5 : ビフェニレン骨格含有フェノールアラルキル型エポキシ樹脂 (日本化薬株式会社製、NC3000、エポキシ当量 276、軟化点 58℃) 。

エポキシ樹脂 6 : ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂 (大日本インキ化学工業株式会社製、HP7200L、エポキシ当量 244、軟化点 56℃) 。

エポキシ樹脂 7 : メトキシナフタレン型エポキシ樹脂 (大日本インキ化学工業株式会社製、EXA7320、エポキシ当量 251、軟化点 58℃) 。

エポキシ樹脂 8 : ジヒドロアントラキノン型エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン (株) 製商品名 YX8800、当量 180、融点 110℃)

[0083] [化12]



[0084] (硬化剤)

硬化剤 1 : 下記一般式 (2) 表されるフェノールノボラック樹脂 (群栄化学 (株) 製、LV-70S。水酸基当量 104、軟化点 67℃、 $c = 1$ 成分の含有割合 63.8%、 $c \geq 4$ 成分の含有割合 4.4%、 $c = 0$ 成分の含有割合 7.4%、数平均分子量 332)

硬化剤 2 : 下記一般式 (2) 表されるフェノールノボラック樹脂 (三井化学 (株) 製、VR-9305。水酸基当量 104、軟化点 75.5℃、 $c = 1$ 成分の含有割合 43.1%、 $c \geq 4$ 成分の含有割合 32.1%、 $c = 0$ 成

分の含有割合 7.7%、数平均分子量 391)

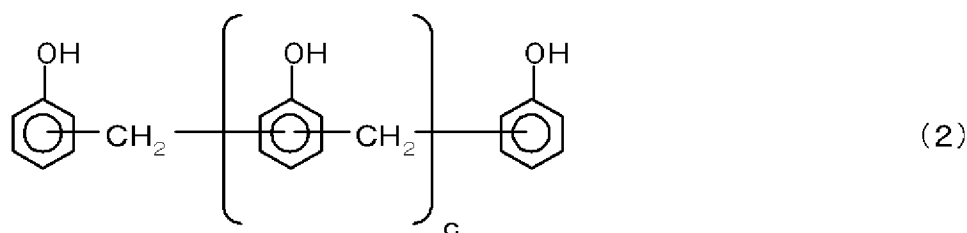
硬化剤 3：攪拌機、温度計、冷却器を備えた反応器に、フェノール 1700 質量部、37%ホルマリン 350 質量部を仕込み、稀酸 17 質量部を加えた後、反応温度を 95℃～105℃に保ちながら 4 時間反応させた。その後、180℃まで昇温し、5000 Pa の減圧度で減圧蒸留を行って未反応のフェノールを除去した上で 230℃まで昇温し、5000 Pa の減圧度で水蒸気量 2 g/min で水蒸気蒸留することによって、下記一般式 (2) に表されるフェノールノボラック樹脂 (水酸基当量 104、軟化点 64.4℃、 $c=1$ 成分の含有割合 33.1%、 $c \geq 4$ 成分の含有割合 11.7%、 $c=0$ 成分の含有割合 19.4%、数平均分子量 338) を得た。

硬化剤 4：下記一般式 (2) 表されるフェノールノボラック樹脂 (住友ベークライト (株) 製、PR-HF-3。水酸基当量 104、軟化点 80℃、 $c=1$ 成分の含有割合 14.5%、 $c \geq 4$ 成分の含有割合 46.5%、 $c=0$ 成分の含有割合 18.9%、数平均分子量 437)

硬化剤 5：硬化剤 3 の合成において、反応後の系中にビスフェノール F (試薬特級、4,4'-ジヒドロキシジフェニルメタン、和光純薬工業 (株) 製) 80 質量部を加え、水蒸気蒸留温度を 230℃から 215℃に変更した以外は、硬化剤 3 と同様の合成操作を行い、下記一般式 (2) 表されるフェノールノボラック樹脂 (水酸基当量 104、軟化点 63.0℃、 $c=1$ 成分の含有割合 21.3%、 $c \geq 4$ 成分の含有割合 22.4%、 $c=0$ 成分の含有割合 32.1%、数平均分子量 333) を得た。

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) で測定した硬化剤 1～5 の各成分含有量、数平均分子量、軟化点を表 1 に、硬化剤 1 及び 2 のゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) チャートを図 3 に示した。硬化剤 3～5 のゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) チャートをそれぞれ図 4～6 に示した。

[化13]



[0086] [表1]

表 1

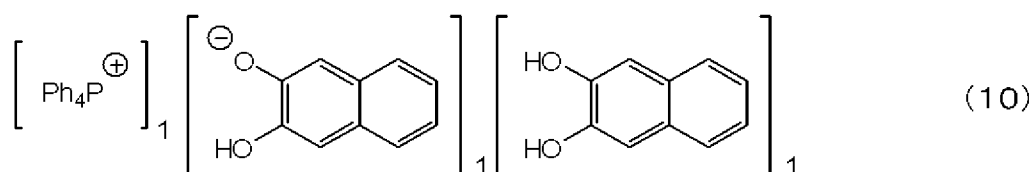
	硬化剤1	硬化剤2	硬化剤3	硬化剤4	硬化剤5
軟化点 °C	67	75.5	64.4	80	63
水酸基当量 g/eq.	104	104	104	104	104
GPC測定による各成分の含有割合(面積分率[%])					
未同定低分子量成分	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
c=0	7.4	7.7	19.4	18.9	32.1
c=1	63.8	43.1	33.1	14.5	21.3
c=2	17.3	11	24.2	11.1	14.1
c=3	7.1	6	11.5	8.9	10.1
c≥4	4.4	32.1	11.7	46.5	22.4
合計	100	99.9	99.9	99.9	100
数平均分子量 Mn [Da]	332	391	338	437	333

[0087] (無機充填剤)

無機充填剤1：電気化学工業製溶融球状シリカFB560（平均粒径30 μm）100質量部、アドマテックス製合成球状シリカSO-C2（平均粒径0.5 μm）6.5質量部、アドマテックス製合成球状シリカSO-C5（平均粒径30 μm）7.5質量部とを予めブレンドしたもの。

[0088] 硬化促進剤1：下記式(10)で表される硬化促進剤

[化14]



[0089] (シランカップリング剤)

シランカップリング剤1：γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン

(信越化学工業(株)製、KBM-403。)

シランカップリング剤2: γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン (信越化学工業(株)製、KBM-803。)

シランカップリング剤3: N-フェニル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン (信越化学工業(株)製、KBM-573。)

[0090] (着色剤)

着色剤1: カーボンブラック (三菱化学工業(株)製、MA600。)

[0091] (離型剤)

離型剤1: カルナバワックス (日興ファイン(株)製、ニッコウカルナバ、融点83℃。)

[0092] 実施例1

エポキシ樹脂1	8.19質量部
硬化剤1	4.31質量部
無機充填剤1	86.5質量部
硬化促進剤1	0.4質量部
シランカップリング剤1	0.1質量部
シランカップリング剤2	0.05質量部
シランカップリング剤3	0.05質量部
着色剤1	0.3質量部
離型剤1	0.1質量部

をミキサーにて常温混合し、85~100℃の加熱ロールで熔融混練し、シート状に延伸させて冷却した後、ハンマーミルにより粉碎し、粉末状樹脂組成物を得た。得られた樹脂組成物を用いて以下の方法で評価した。評価結果を表2に示す。

[0093] スパイラルフロー: 低圧トランスファー成形機(コータキ精機(株)製、KTS-15)を用いて、EMMI-1-66に準じたスパイラルフロー測定用金型に、175℃、注入圧力6.9MPa、保圧時間120秒の条件で粉末状の樹脂組成物を注入し、流動長を測定した。スパイラルフローは、流

動性のパラメータであり、数値が大きい方が、流動性が良好である。単位は cm。

[0094] タブレット打錠成型性：樹脂組成物を粉末成型プレス機（玉川マシナリー（株）製、S-20-A）を用いて、タブレットのでき上がり重量 15 g、サイズ $\phi 18\text{ mm} \times$ 高さ約 3.1 mm となるよう調整し、打錠圧力 600 Pa にて 200 個を連続打錠した。打錠後に外観不良、破損のあるタブレットをカウントし、不良率（%）で表した。次に、良品タブレット 100 個を内装ポリエチレン袋のダンボール箱に梱包して、30 cm の高さから 3 回落下させた後に、同様の外観観察を実施し、落下試験後の不良率（%）をカウントした。

[0095] ワイヤー流れ量の測定：タブレット化した封止材料を低圧トランスファー成形機にて 175°C、6.9 MPa、120 秒の条件にて、ワイヤー流れ量評価試験用の 208 ピン QFP パッケージ（寸法； $28 \times 28 \times 2.4\text{ mm}$ t、Cu リードフレーム、テスト素子； $9 \times 9\text{ mm}$ 、ワイヤー；Au、1.2 mils、5 mm）を各 10 パッケージ成形し、成形した 208 ピン QFP パッケージを軟 X 線透過装置（エクスロン・インターナショナル（株）製、型番 PMS-160）で観察した。ワイヤー流れ量の計算方法としては、1 個のパッケージの中で最も流れた（変形した）ワイヤーの流れ量を（F）、そのワイヤーの長さを（L）として、 $\text{流れ量} = F / L \times 100\text{（\%）}$ を算出し、10 パッケージの平均値を表 2 に示した。なお、ワイヤー流れ量の判定として 5% 未満を合格、5% 以上を不合格とした。

[0096] 実施例 2～17、比較例 1～8

表 2、表 3、表 4 の配合に従い、実施例 1 と同様にして樹脂組成物を製造し、実施例 1 と同様にして評価した。評価結果を表 2、表 3、表 4 に示す。なお、実施例 2、3 においては、予め 2 種の硬化剤を表 2 の比率に基づいて配合し、100°C で溶融混合し、さらに粉砕したものを作製したうえで、他の原料とともにミキサーにて常温混合し、その後は実施例 1 と同様にして粉末状樹脂組成物を得た。また、表 2 において記載した実施例 2、3 における

フェノール樹脂（B1）の軟化点、および $c=1$ 成分、 $c\geq 4$ 成分、 $c=0$ 成分の含有割合についても、予め2種の硬化剤を表2の比率に基づいて配合し、 100°C で溶融混合し、さらに粉砕したものを作製して、軟化点の測定とゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定を行った。

[0097] [表2]

表 2

				実 施 例								
				1	2	3	4	5	6	7	8	9
組 成 〔質量部〕	エ ポ キ シ 樹 脂 (A)	エ ポ キ シ 樹 脂 (A1)	エポキシ樹脂1	8.19	8.19	8.19	5.92	5.87	5.88	4.06		
			エポキシ樹脂2								5.78	5.72
			エポキシ樹脂3									
			エポキシ樹脂4									
		そ の 他 の エ ポ キ シ 樹 脂	エポキシ樹脂5				2.54				2.47	
			エポキシ樹脂6					2.51				2.45
			エポキシ樹脂7						2.52			
			エポキシ樹脂8							4.06		
	硬 化 剤 (B)	フェノール樹脂 (B1)	硬化剤1	4.31	1.94	3.02	4.04	4.12	4.10	4.38	4.25	4.33
			硬化剤2		2.37							
			硬化剤3									
			硬化剤4			1.29						
			硬化剤5									
	無機充填剤(C)		無機充填剤1	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5
	そ の 他 の 添 加 剤		硬化促進剤1	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
			シランカップリング剤1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
			シランカップリング剤2	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
			シランカップリング剤3	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
			着色剤1	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			離型剤1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
フェノール樹脂(B1) での各成分含有量 ^{注1)}			c=1成分 [%]	63.8	52.4	49.0	63.8	63.8	63.8	63.8	63.8	
		c≥4成分 [%]	4.4	19.6	17.0	4.4	4.4	4.4	4.4	4.4		
		c=0成分 [%]	7.4	7.6	10.9	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4		
A1融点と B1軟化点との 温度差 ^{注1)}	エポキシ樹脂(A1)の融点T _{A1} [°C]		80	80	80	80	80	80	80	45	45	
	フェノール樹脂(B1)の軟化点T _{B1} [°C]		67	72	71	67	67	67	67	67	67	
	温度差T _{A1} -T _{B1} [°C]		13	8	9	13	13	13	13	-22	-22	
評価結果	スパイラルフロー [cm]		143	122	120	113	117	119	122	120	128	
	ワイヤー流れ量 [%]		2.9	3.7	3.6	4.5	3.5	4.2	3.2	4.4	3.1	
	タブレット不良率(打錠直後) [%]		0	0	0	0.5	0	0	0	0	0	
	タブレット不良率(落下試験後) [%]		0	0	0	0	0	0	0	0	0	

注1) 実施例2, 3の硬化剤について: 予め2種の硬化剤を表の比率で配合し、 100°C で溶融混合、粉砕したものをを用いて、実施例の樹脂組成物作成、GPC測定、および軟化点測定を実施した。

[0098]

[表3]

表 3

				実 施 例								
				10	11	12	13	14	15	16	17	
組 成 「質量部」	エポキシ樹脂 (A)	エポキシ樹脂 (A1)	エポキシ樹脂1									
			エポキシ樹脂2	5.73	3.99							
			エポキシ樹脂3			8.11	5.89	5.83	5.84	4.04		
			エポキシ樹脂4								8.82	
		その他のエポキシ樹脂	エポキシ樹脂5				2.52					
			エポキシ樹脂6					2.50				
			エポキシ樹脂7	2.46					2.50			
			エポキシ樹脂8		3.99					4.04		
	硬化剤 (B)	フェノール樹脂 (B1)	硬化剤1	4.31	4.52	4.39	4.09	4.17	4.15	4.42	3.68	
			硬化剤2									
			硬化剤3									
			硬化剤4									
			硬化剤5									
	無機充填剤 (C)		無機充填剤1	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	
	その他の添加剤	硬化促進剤1	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	
		シランカップリング剤1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	
		シランカップリング剤2	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	
		シランカップリング剤3	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	
		着色剤1	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	
		離型剤1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	
フェノール樹脂(B1)での各成分含有量 ^{注1)}			c=1 成分 [%]	63.8	63.8	63.8	63.8	63.8	63.8	63.8	63.8	
			c≥4 成分 [%]	4.4	4.4	4.4	4.4	4.4	4.4	4.4	4.4	4.4
			c=0 成分 [%]	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4	7.4
A1融点とB1軟化点との温度差 ^{注1)}	エポキシ樹脂(A1)の融点T _{A1} [°C]			45	45	107	107	107	107	107	120	
	フェノール樹脂(B1)の軟化点T _{B1} [°C]			67	67	67	67	67	67	67	67	
	温度差T _{A1} -T _{B1} [°C]			-22	-22	40	40	40	40	40	53	
評価結果	スパイラルフロー[cm]			124	142	150	128	131	124	145	131	
	ワイヤー流れ量[%]			4.4	3.1	3.0	4.9	3.5	4.3	3.3	3.8	
	タブレット不良率(打錠直後)[%]			0	0	1	0	2	0	0	3	
	タブレット不良率(落下試験後)[%]			0	0	1	1	0	1	2	2	

[0099]

[表4]

表 4

				比 較 例							
				1	2	3	4	5	6	7	8
組 成 部 「 質 量 部 」	エ ポ キ シ 樹 脂 (A)	エポキシ樹脂 (A1)	エポキシ樹脂1	8.22	8.22	8.22	8.22				
			エポキシ樹脂2								
			エポキシ樹脂3								
			エポキシ樹脂4								
		その他の エポキシ樹脂	エポキシ樹脂5				9.18				
			エポキシ樹脂6					8.87			
			エポキシ樹脂7						8.94		
			エポキシ樹脂8							8.04	
	硬 化 剤 (B)	フェノール樹脂 (B1)	硬化剤1				3.32	3.63	3.56	4.46	
			硬化剤2	4.28							
			硬化剤3		4.28						
			硬化剤4			4.28					
			硬化剤5				4.28				
	無機充填剤(C)		無機充填剤1	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5	86.5
	その他の添加剤	硬化促進剤1	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
		シランカップリング剤1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
		シランカップリング剤2	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
シランカップリング剤3		0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	
着色剤1		0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	
離型剤1		0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	
フェノール樹脂(B1) での各成分含有量 ^{注1)}			c=1 成分 [%]	43.1	33.1	14.5	21.3	63.8	63.8	63.8	63.8
			c≥4 成分 [%]	32.1	11.7	46.5	22.4	4.4	4.4	4.4	4.4
			c=0 成分 [%]	7.7	19.4	18.9	32.1	7.4	7.4	7.4	7.4
A1融点と B1軟化点との 温度差 ^{注1)}	エポキシ樹脂(A1)の融点T _{A1} [°C]			80	80	80	80	—	—	—	—
	フェノール樹脂(B1)の軟化点T _{B1} [°C]			75	65	80	63	67	67	67	67
	温度差T _{A1} -T _{B1} [°C]			5	15	0	17	—	—	—	—
評価結果	スパイラルフロー[cm]			102	124	87	145	98	90	111	142
	ワイヤー流れ量[%]			5.9	4.9	6.1	3.0	5.7	6.2	5.8	3.3
	タブレット不良率(打錠直後)[%]			0	17.5	0	19.5	0	8.5	0	23
	タブレット不良率(落下試験後)[%]			4	11	0	39	0	13.5	0	42

[0100] 実施例1～17は、一般式(1)で表される構造を有するエポキシ樹脂(A1)、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)を含み、かつ、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)の全量中に含まれるc=1成分の含有割合が面積分率で40%以上、かつc $\geq$ 4成分の含有割合が面積分率で20%以下であるものであり、エポキシ樹脂(A1)の種類や配合割合を変更したもの、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)におけるc=1成分、c $\geq$ 4成分の含有割合を変更したものであるが、そのいずれにおいても、流動性(スパイラルフロー)、ワイヤー流れ、タブレット成型性のバランスに優れる結果となった。

[0101] 一方、一般式(2)で表されるフェノール樹脂(B1)は含むものの、ゲ

ルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c \geq 4$ 成分の含有割合が面積分率で２０％を大きく超える比較例１、３では、流動性（スパイラルフロー）が低下して、ワイヤー流れが劣る結果となった。また、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）は含むものの、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c = 1$ 成分の含有割合が面積分率で４０％を下回る比較例２、４では、タブレット成型性が劣る結果となった。尚、比較例３も $c = 1$ 成分の含有割合が４０％を下回るものであるが、比較例３は $c \geq 4$ 成分の含有割合が２０％を大きく超えるものであるため、タブレット成型性は比較的良好な結果となっているものである。また、一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）を用いていない比較例５～７では、流動性（スパイラルフロー）が低下して、ワイヤー流れが劣る結果となった。さらに、エポキシ樹脂６（ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂）を用いた比較例６では、タブレット成型も劣る結果となった。また、一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）を用いていないものの、結晶性のエポキシ樹脂であるエポキシ樹脂８（ジヒドロアントラキノン型エポキシ樹脂）を用いた比較例８では、流動性（スパイラルフロー）、ワイヤー流れは良好な結果が得られたものの、タブレット成型性が劣る結果となった。

- [0102] 上記の結果のとおり、一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）を含み、かつ、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c = 1$ 成分の含有割合が面積分率で４０％以上、かつ $c \geq 4$ 成分の含有割合が面積分率で２０％以下である場合においてのみ、流動性（スパイラルフロー）、ワイヤー流れ、タブレット成型性のバランスに優れる結果が得られるものであり、その効果は、一般式（１）で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）を含むこ

とと、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）を含み、かつ、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（２）で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）の全量中に含まれる $c = 1$ 成分の含有割合が面積分率で 40%以上、かつ $c \geq 4$ 成分の含有割合が面積分率で 20%以下であること、とを組み合わせることによる相乗効果であると考えられる。

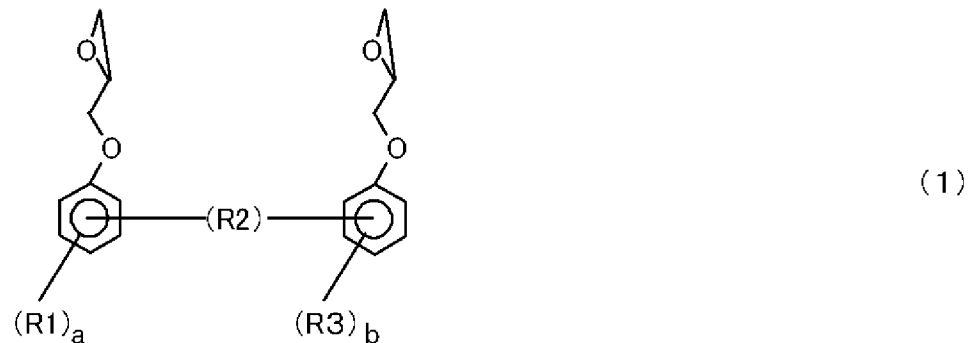
この出願は、平成 21 年 3 月 11 日に提出された日本特許出願特願 2009-057387 を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

請求の範囲

[請求項1] エポキシ樹脂（Ａ）と硬化剤（Ｂ）と無機充填剤（Ｃ）とを含む半導体封止用樹脂組成物であって、

前記エポキシ樹脂（Ａ）が下記一般式（１）：

[化1]

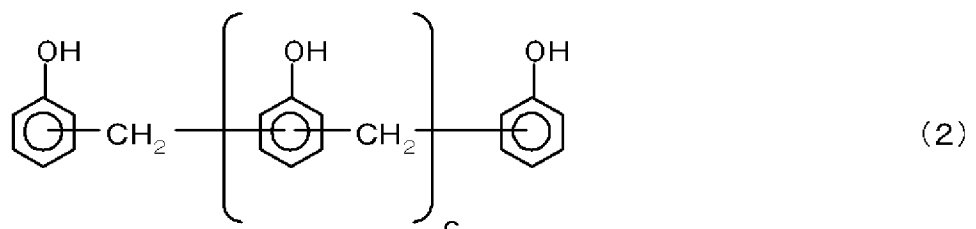


（ただし、上記一般式（１）において、 R_1 及び R_3 は、炭素数 1 ～ 5 の炭化水素基であり、互いに同じであっても異なってもよい。 R_2 は直接結合、炭素数 1 ～ 5 の炭化水素基、 $-S-$ 、 $-O-$ のいずれかを表す。 a 及び b は 0 ～ 4 の整数であり、互いに同じであっても異なってもよい。）

で表される構造を有するエポキシ樹脂（Ａ１）を含み、

前記硬化剤（Ｂ）が下記一般式（２）：

[化2]



（ただし、上記一般式（２）において、 c は 0 ～ 20 の整数である。）

で表されるフェノール樹脂（Ｂ１）を含み、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、一般式（２）で表されるフェノ

ール樹脂（B 1）の全量中に含まれる $c = 1$ 成分の含有割合が面積分率で 40%以上であり、かつ $c \geq 4$ 成分の含有割合が面積分率で 20%以下である、

ことを特徴とする半導体封止用樹脂組成物。

[請求項2]

前記フェノール樹脂（B 1）が、ゲルパーミエーションクロマトグラフの面積法による測定で、前記一般式（2）で表されるフェノール樹脂（B 1）の全量中に含まれる $c = 0$ 成分の含有割合が面積分率で 16%以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[請求項3]

前記エポキシ樹脂（A 1）が、アルキル基置換又は非置換のビスフェノール、ビスフェノール A、ビスフェノール F、ビスフェノール S、ビスフェノール A/D、オキシビスフェノールからなる群から選ばれたフェノール化合物をジグリシジルエーテル化した結晶性エポキシ樹脂であることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の半導体封止用樹脂組成物。

[請求項4]

前記エポキシ樹脂（A 1）が融点を持つものであり、その融点を T_{A1} とし、前記フェノール樹脂（B 1）の軟化点を T_{B1} としたとき、両者の温度差の絶対値 $|T_{A1} - T_{B1}|$ が 35℃以下であることを特徴とする請求項 1 ないし請求項 3 のいずれか 1 項に記載の半導体封止用樹脂組成物。

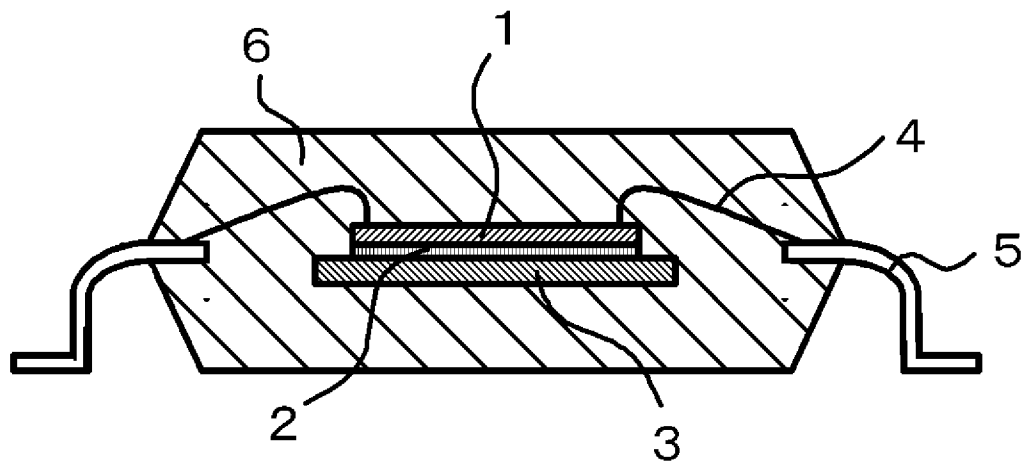
[請求項5]

前記半導体封止用樹脂組成物が、タブレット状としてトランスファ成形法により半導体素子を封止するために用いられることを特徴とする請求項 1 ないし請求項 4 のいずれか 1 項に記載の半導体封止用樹脂組成物。

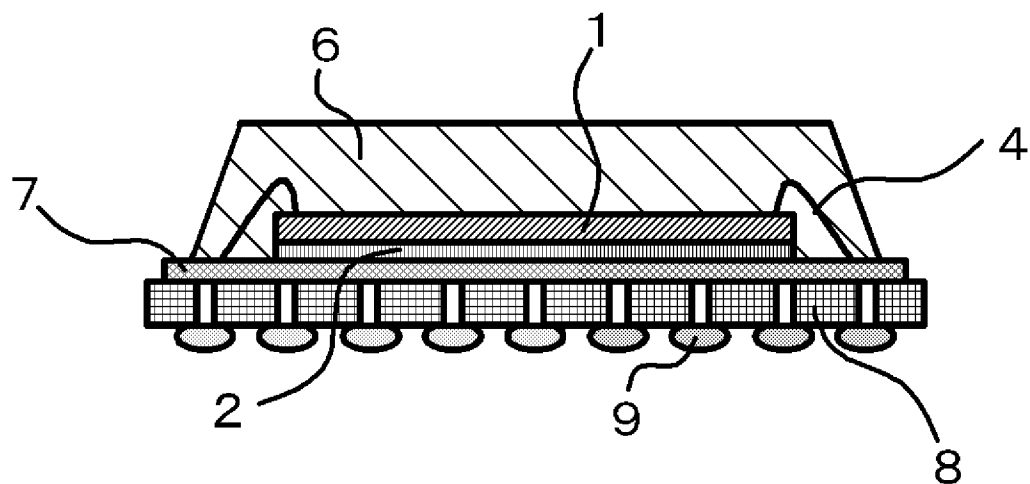
[請求項6]

請求項 1 ないし請求項 5 のいずれか 1 項に記載の半導体封止用樹脂組成物の硬化物で半導体素子を封止して得られることを特徴とする半導体装置。

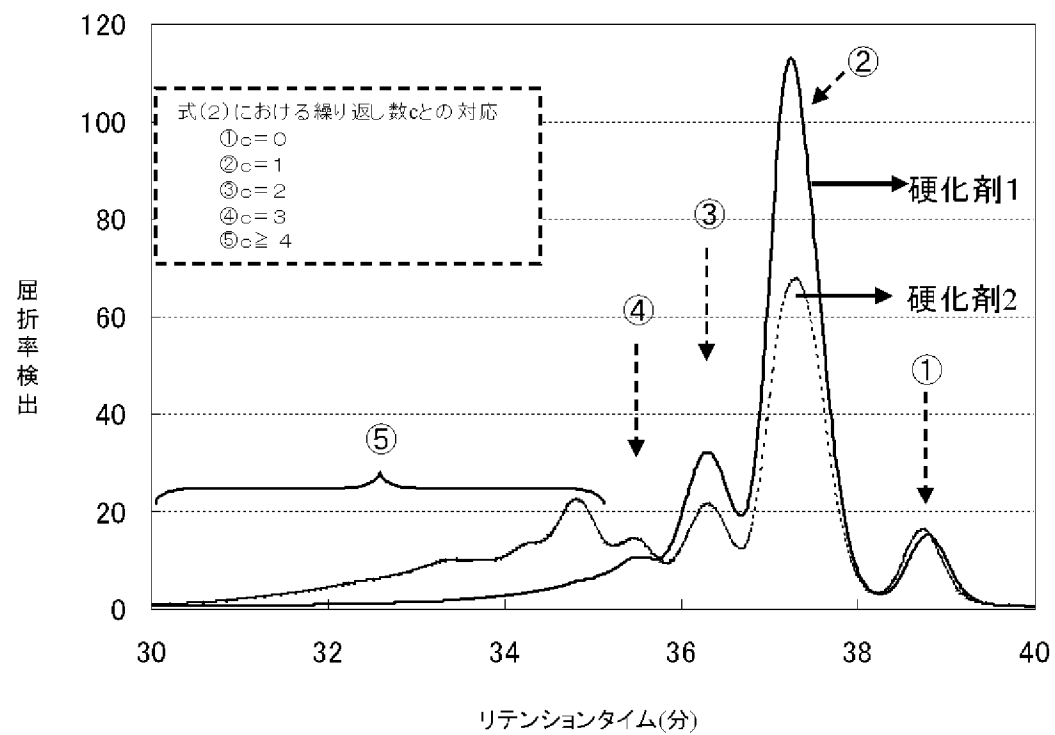
[図1]



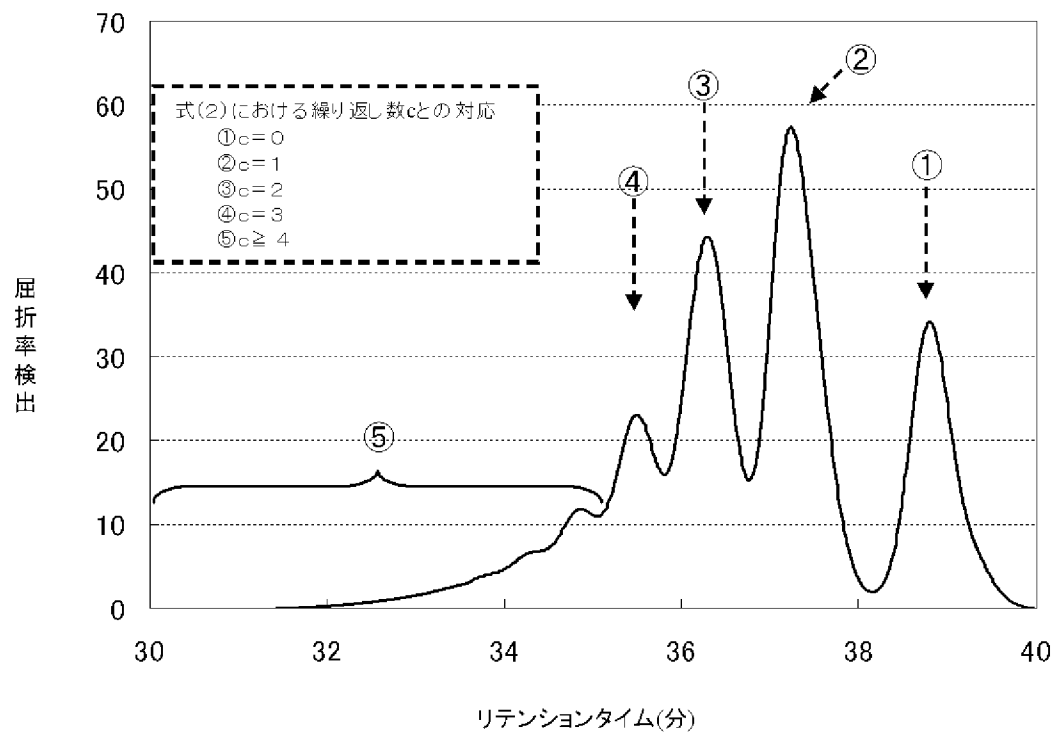
[図2]



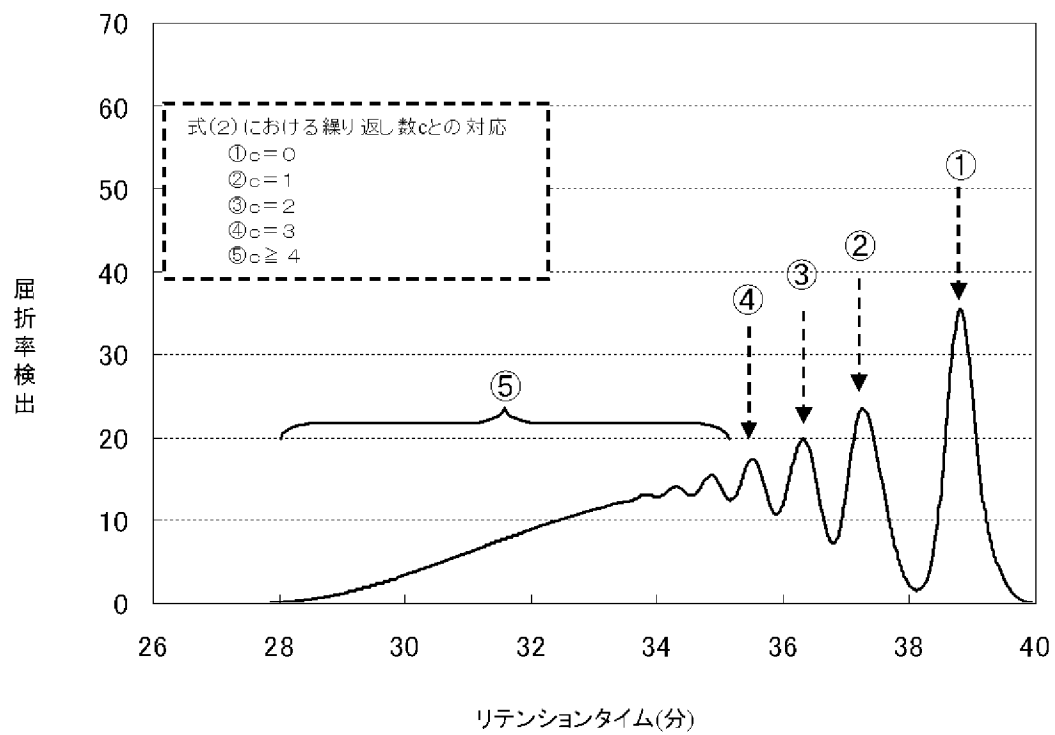
[図3]



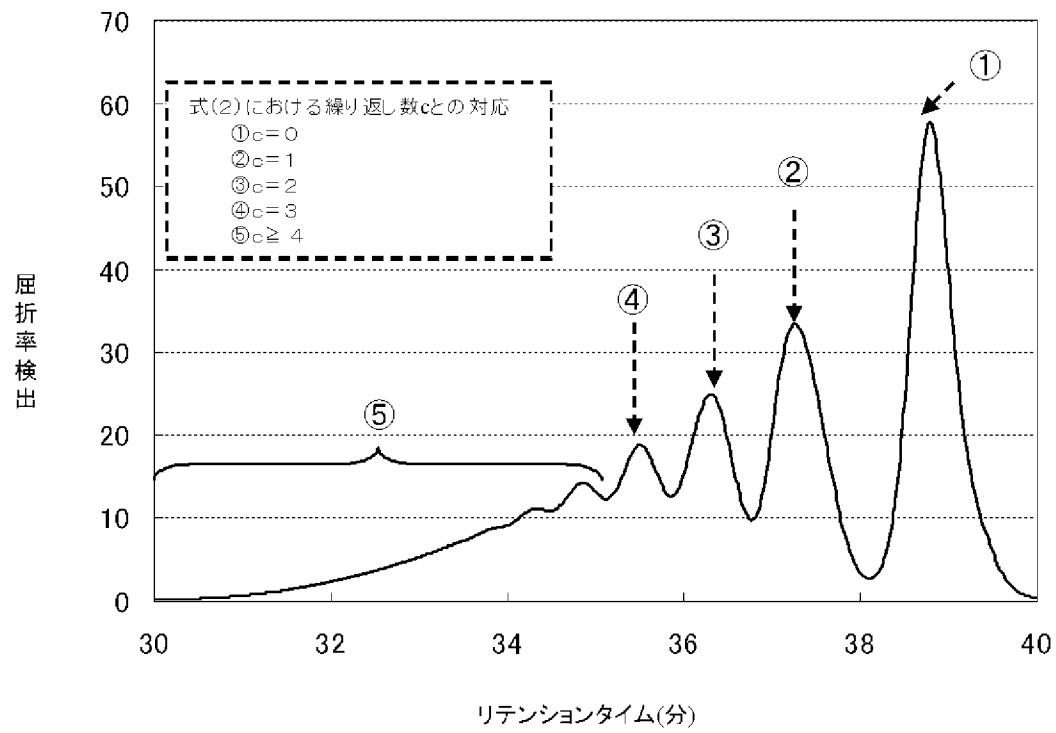
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/001410

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08G59/62(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C08G59/62, H01L23/29, H01L23/31

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2010

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2010 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2010

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2000-212390 A (Nitto Denko Corp.), 02 August 2000 (02.08.2000), claims; paragraphs [0016] to [0020], [0055] to [0059]; examples (Family: none)	1-6
X	JP 2002-037863 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 06 February 2002 (06.02.2002), claims; paragraphs [0023], [0031], [0032], [0035], [0036]; examples (Family: none)	1-6



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

25 May, 2010 (25.05.10)

Date of mailing of the international search report

08 June, 2010 (08.06.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/001410

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-003578 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 09 January 2002 (09.01.2002), claims; paragraphs [0022], [0028], [0029], [0032], [0033]; examples (Family: none)	1-6
X	JP 06-239967 A (Toray Industries, Inc.), 30 August 1994 (30.08.1994), claims; paragraphs [0014], [0019] to [0022], [0029], [0031], [0035]; table 1; examples (Family: none)	1-6
A	JP 2000-191886 A (Nitto Denko Corp.), 11 July 2000 (11.07.2000), claims; entire text (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08G59/62(2006.01)i, H01L23/29(2006.01)i, H01L23/31(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08G59/62, H01L23/29, H01L23/31

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2000-212390 A（日東電工株式会社）2000.08.02, 特許請求の範囲、段落番号【0016】～【0020】、【0055】 ～【0059】、実施例（ファミリーなし）	1-6
X	JP 2002-037863 A（松下電工株式会社）2002.02.06, 特許請求の範囲、段落番号【0023】、【0031】、【0032】、 【0035】、【0036】、実施例（ファミリーなし）	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 5 . 0 5 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

0 8 . 0 6 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

松岡 弘子

4 J

3 3 4 6

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2002-003578 A (松下電工株式会社) 2002. 01. 09, 特許請求の範囲、段落番号【0022】、【0028】、【0029】、 【0032】、【0033】、実施例 (ファミリーなし)	1-6
X	JP 06-239967 A (東レ株式会社) 1994. 08. 30, 特許請求の範囲、段落番号【0014】、【0019】～【0022】、 【0029】、【0031】、【0035】、表1、実施例 (ファミリーなし)	1-6
A	JP 2000-191886 A (日東電工株式会社) 2000. 07. 11, 特許請求の範囲及び全文 (ファミリーなし)	1-6